



Original Research Article - Extended Abstract

Effect of WC Addition on the Wear Resistance of Mullite-WC Composites Sintered by Spark Plasma Sintering

Hosein Rajaei ¹, Milad Bahamirian ², Iman Mobasherpour ^{3*}, Mohammad Zakeri ³, Mohammad Farvizi ³

¹ Instructor, Department of Ceramic, Materials and Energy Research Center, Karaj, Iran

² Assistant Professor, Department of Mining and Metallurgical Engineering, Yazd University, Yazd, Yazd, Iran

³ Associate Professor, Department of Ceramic, Materials and Energy Research Center, Karaj, Iran

*Corresponding Author's Email: iman.mobasherpour@gmail.com, i.mobasherpour@merc.ac.ir (Iman Mobasherpour)

Paper History:

Received: 2022-07-04

Revised in revised form: 2022-09-14

Scientific Accepted: 2022-10-08

Keywords:

Spark Plasma Sintering (SPS),
Mullite,
Tungsten Carbide,
Wear,
Composite

Abstract

This study aims to improve the wear resistance of mullite ceramics as one of the most critical engineering ceramics by adding tungsten carbide (WC) particles. For this purpose, mullite-WC composites without and with adding 5, 10, and 15 % by weight of WC particles produced by Spark Plasma Sintering (SPS) method. In addition, it investigates the effect of sintering temperature on the wear resistance of mullite-WC composites applied by the SPS process at 1300 °C, 1350 °C, 1400 °C, and 1450 °C for 4 minutes under the pressure of 30 MPa. The results pin on the disk testing indicates that upon increasing the weight percentage of WC particles and increasing the sintering temperature up to 1400 °C, the wear resistance of mullite-WC composites would increase. However, increasing the sintering temperature up to the range of 1450 °C led to a decrease in the wear resistance due to the poor mechanical properties and formation of the W₂C phase. The results from Scanning Electron Microscopy (FESEM) analysis are indicative of the formation of abrasive wear and surface layer structure mechanisms on the surface in mullite ceramics samples with and without WC reinforcing particles.



<https://doi.org/10.30501/jamt.2022.350273.1236>

URL: https://www.jamt.ir/article_158646.html

1. INTRODUCTION

Mullite (3Al₂O₃·2SiO₂) is one of the aluminosilicate phases with promising properties such as high-temperature stability, excellent thermal shock, creep resistance, suitable mechanical strength, and low thermal conductivity. These properties make the mullite a good option for high-temperature applications [1]. The tribological properties of ceramic composite materials are greatly affected by their mechanical properties and inherent brittleness. Improving the microstructure of the ceramic matrix composites during the production process has in turn caused a significant improvement in the ceramic wear properties [2]. Among various sintering techniques, Spark Plasma Sintering (SPS), compared to other conventional sintering techniques, provides the ceramic sintering with a high melting point in a short time by applying a combination of uniaxial pressure and electric current [3]. Recently, Mullite reinforced by different reinforcement oxide and carbide materials such as TiC [4], SiC [5], Ta₂O₅ [6], and ZrO₂ [7] sintered by fast sintering techniques showed significant improvement in the mechanical properties of monolithic mullite bodies. In our previous works, the effects of sintering temperature and addition of tungsten carbide reinforcement phase into the mullite matrix composite synthesized through the direct reaction of Alumina and Kaolin were investigated. The findings suggested that followed by adding the optimum amount

of tungsten carbide to the mullite, the properties of monolithic mullite can be significantly improved [8, 9]. The current study aims to investigate the tribological properties of the mullite-tungsten carbide composite based on the Pin on Disc (PoD) method.

2. MATERIALS AND METHODS

Mullite powder was prepared through a direct reaction of alumina and kaolin. More details of the preparation process are reported in the literature [10]. Tungsten carbide powder with the average particle size of 3 microns provided by Alfa Aesar Co. (Art No. 12070) was used as the reinforcing phase. Spark plasma sintering technique was employed to consolidate mullite matrix composites reinforced with 5, 10, and 15 wt % of tungsten carbide. The mixture of composite powder was placed into a graphite die of 30 mm in diameter and then sintered using an SPS machine (SPS-20T-10, china) under an initial vacuum atmosphere of 13 Pa and punching pressure of 30 MPa. The sample heated up at a constant rate to reach the optimum temperature of 1400 °C [8]. In order to investigate the effect of sintering temperature on the wear properties of mullite-tungsten carbide composite, the sample containing 10 wt % tungsten carbide was sintered at three temperatures of 1350, 1400, and 1450 °C using the SPS technique.

Scanning Electron Microscopy (SEM), (ZEISS) operating at 15 KV was used to observe and measure the

Please cite this article as: Rajaei, H., Bahamirian, M., Mobasherpour, I., Zakeri, M., Farvizi, M., "Effect of WC addition on the wear resistance of mullite-WC composites sintered by spark plasma sintering", *Journal of Advanced Materials and Technologies (JAMT)*, Vol. 12, No. 1, (2023), 57-69. (<https://doi.org/10.30501/jamt.2022.350273.1236>).



width of the wear tracks. X-Ray Diffraction (XRD), (Philips, Cu K α 40 KV, 30 mA, Step size: 0.02°) was used to check the phase analysis of the sample after the sintering process with SPS.

According to the ASTM-C1327-08 standard, the Vickers hardness was measured using a microhardness tester (MVK-H21, Akashi Co.) under an applied load of 1 kg for the specimens that were prepared using the standard metallographic polishing techniques down to 1 μ m. Pin on disc testing (according to ASTM G132-96) was also done to measure the wear resistance of the sintered samples. The diameter of the samples was 30 mm. Further, a tungsten carbide counterpart pin with the hardness of 80 HRA was used.

3. RESULTS AND DISCUSSION

Figure 1 shows the microhardness variation and wear track width with respect to the content of the tungsten carbide at the composition. It can be seen that upon increasing the percentage of the reinforcing tungsten

carbide phase, the microhardness of the sintered samples increased that in turn improved the wear resistance of the composite. The hardness value for monolithic mullite was first equal to 12.69 GPa which further reached its maximum value of 15.89 GPa regarding the composite with 10 wt % WC but later, it slightly dropped with adding further WC content.

Figure 2 shows the microhardness variation and wear track width with respect to the sintering temperature of SPS in the sample containing 10 wt % tungsten carbide. According to this graph, with an increase in the sinter temperature, the width of the wear area decreased at 1400 °C and then increased slightly at 1450 °C. According to the results from the XRD analysis of the Mullite-10 % WC-1450 sample, some tungsten carbide is dicarbided and W₂C phase is formed. The mechanical properties of this phase are weaker than those of tungsten carbide. Therefore, the wear resistance of the Mullite-10 %WC composition at 1450 °C decreased while the width of the wear area increased.

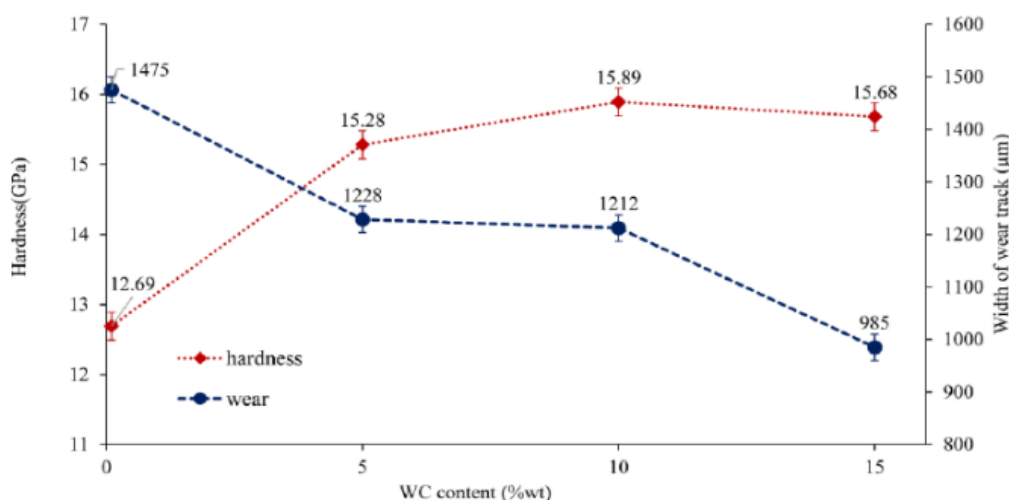


Figure 1. Triple diagram of hardness - wear width - percentage of tungsten carbide in samples sintered at 1400 °C

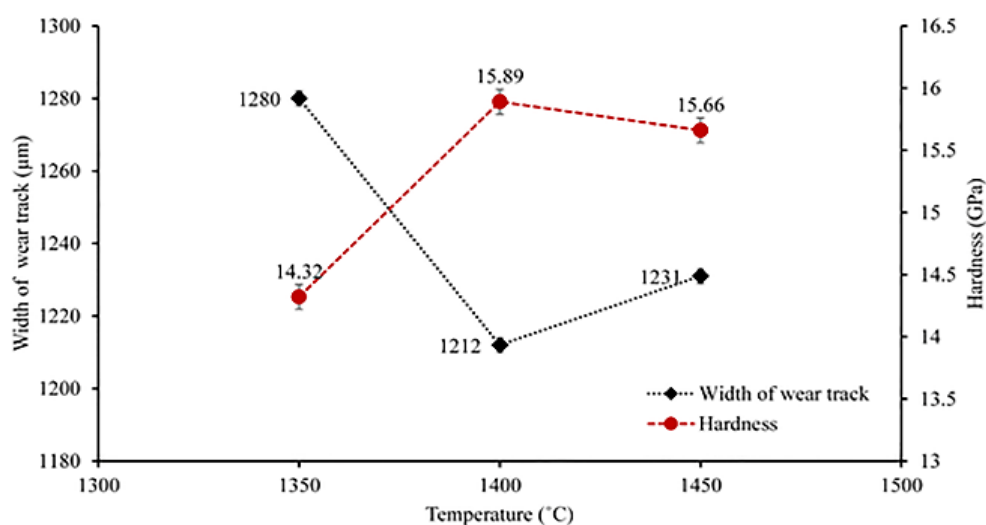


Figure 2. Triple diagram of hardness - wear width-sinter temperature for samples containing 10 wt % of tungsten carbide

4. CONCLUSION

In this study, the tribological properties of mullite-tungsten carbide composite prepared through Spark Plasma Sintering (SPS) were investigated using the pin

on disc test. The results of the microhardness and pin on disc test indicated that the higher percentage of tungsten carbide improved the hardness and wear resistance of the consolidated composite. In addition, with further

increase in the sinter temperature, the wear resistance increased at 1400 °C and then, it slightly decreased at the 1450 °C. The decrease in the wear resistance resulted from dicarburation of tungsten carbide and its transformation into W_2C phase in the plasma spark sintering process.

5. ACKNOWLEDGEMENT

By this means, we thank the officials of the laboratories of Materials and Energy Research Center.

REFERENCES

1. Mazdiyasi, K., Brown, L., "Synthesis and mechanical properties of stoichiometric aluminum silicate (mullite)", *Journal of the American Ceramic Society*, Vol. 55, (1972), 548-552. <https://doi.org/10.1111/j.1151-2916.1972.tb13434.x>
2. Silvestre, J., Silvestre, N., De Brito, J., "An overview on the improvement of mechanical properties of ceramics nanocomposites", *Journal of Nanomaterials*, Vol. 2015, (2015). <https://doi.org/10.1155/2015/106494>
3. Mamedov, V., "Spark plasma sintering as advanced PM sintering method", *Powder Metallurgy*, Vol. 45, (2002) 322-328. <https://doi.org/10.1179/003258902225007041>
4. Ghahremani, D., Ebadzadeh, T., Maghsodipour, A., "Densification, microstructure and mechanical properties of mullite-TiC composites prepared by spark plasma sintering", *Ceramics International*, Vol. 41, (2015), 1957-1962. <https://doi.org/10.1016/j.ceramint.2014.07.146>
5. Gao, L., Jin, X., Kawaoka, H., Sekino, T., Niihara, K., "Microstructure and mechanical properties of SiC-mullite nanocomposite prepared by spark plasma sintering", *Materials Science and Engineering: A*, Vol. 334, (2002) 262-266. [https://doi.org/10.1016/S0921-5093\(01\)01898-6](https://doi.org/10.1016/S0921-5093(01)01898-6)
6. Derakhshandeh, S. M. R., Sirati Gohari, M., Karimi Saeidabadi, E., Jam, A., Rajaei, H., Fazili, A., Alizadeh, M., Ghasali, E., Pakseresht, A. H., Ebadzadeh, T., "Comparison of spark plasma and microwave sintering of mullite based composite: mullite/Ta₂O₅ reaction", *Ceramics International*, Vol. 44, (2018) 13176-13181. <https://doi.org/10.1016/j.ceramint.2018.04.142>
7. Khor, K. A., Yu, L., Li, Y., Dong, Z. L., Munir, Z., "Spark plasma reaction sintering of ZrO₂-mullite composites from plasma spheroidized zircon/alumina powders", *Materials Science and Engineering: A*, Vol. 339, (2003) 286-296. [https://doi.org/10.1016/S0921-5093\(02\)00151-X](https://doi.org/10.1016/S0921-5093(02)00151-X)
8. Rajaei, H., Farvizi, M., Mobasherpour, I., Zakeri, M., "Effect of spark plasma sintering temperature on microstructure and mechanical properties of mullite-WC composites", *International Journal of Refractory Metals and Hard Materials*, Vol. 70, (2018), 197-201. <https://doi.org/10.1016/j.ijrmhm.2017.10.012>
9. Rajaei, H., Farvizi, M., Mobasherpour, I., Zakeri, M., "Effect of composition on mechanical properties of mullite-WC nano composites prepared by spark plasma sintering", *Tribology in Industry*, Vol. 38, (2016) 552-558. <https://www.tribology.rs/journals/2016/2016-4.html>
10. Rajaei, H., Farvizi, M., Mobasherpour, I., Zakeri, M., "Effect of mullite synthesis methods on the spark plasma sintering behaviour and mechanical properties", *Micro & Nano Letters*, Vol. 11, (2016) 465-468. <https://doi.org/10.1049/mnl.2016.0092>



مقاله کامل پژوهشی

تأثیر افزودن کاربید تنگستن بر مقاومت به سایش کامپوزیت‌های مولایت-کاربید تنگستن سیترشده به روش تفجوشی پلاسمای جرقه‌ای

حسین رجایی^۱، میلاد بهامیریان^۲، ایمان مباحشرپور^{۳*}، محمد ذاکری^۳، محمد فرویزی^۳

^۱ مربی، پژوهشکده سرامیک، پژوهشگاه مواد و انرژی، کرج، ایران

^۲ استادیار، گروه مهندسی مواد، دانشکده مهندسی معدن و متالورژی، دانشگاه یزد، یزد، ایران

^۳ دانشیار، پژوهشکده سرامیک، پژوهشگاه مواد و انرژی، کرج، ایران

تاریخچه مقاله:

ثبت اولیه: ۱۴۰۱/۰۴/۱۳

دریافت نسخه اصلاح شده: ۱۴۰۱/۰۶/۲۳

پذیرش علمی: ۱۴۰۱/۰۷/۱۶

کلیدواژه‌ها:

تفجوشی پلاسمای جرقه‌ای،

مولایت،

کاربید تنگستن،

سایش،

کامپوزیت

چکیده هدف از این پژوهش، بهبود مقاومت به سایش سرامیک‌های مولایتی به‌عنوان یکی از مهم‌ترین سرامیک‌های مهندسی از طریق افزودن ذرات کاربید تنگستن است. برای این منظور، کامپوزیت‌های مولایت-کاربید تنگستن بدون و با افزودن ۵، ۱۰ و ۱۵ درصد وزنی ذرات کاربید تنگستن توسط روش تفجوشی پلاسمای جرقه‌ای تولید شدند. علاوه بر این، به‌منظور بررسی اثر دمای تفجوشی بر مقاومت به سایش کامپوزیت‌های مولایت-کاربید تنگستن، فرایند تفجوشی پلاسمای جرقه‌ای در دماهای ۱۳۰۰، ۱۳۵۰، ۱۴۰۰ و ۱۴۵۰ درجه سلسیوس به‌مدت ۴ دقیقه و با اعمال فشار ۳۰ مگاپاسکال به انجام رسید. نتایج آزمون پین روی دیسک بیانگر آن است که با افزایش درصد وزنی ذرات کاربید تنگستن و افزایش دمای تفجوشی تا ۱۴۰۰ درجه سلسیوس، مقاومت به سایش کامپوزیت‌های مولایت-کاربید تنگستن افزایش یافته است، درحالی‌که افزایش دمای سینتر تا محدوده ۱۴۵۰ درجه سلسیوس، به‌دلیل افت خواص مکانیکی و تشکیل فاز W₂C، به کاهش مقاومت به سایش منجر شده است. نتایج آنالیز میکروسکوپ الکترونی روبشی بیانگر ایجاد سازوکارهای سایش خراشان و لایه‌ای شدن در سطح و مسیر سایش در نمونه‌های مولایتی با و بدون ذرات تقویت‌کننده کاربید تنگستن است.



<https://doi.org/10.30501/jamt.2022.350273.1236> URL: https://www.jamt.ir/article_158646.html

و [۲].

۱- مقدمه

امروزه، سرامیک‌های مولایتی، به‌دلیل داشتن خواص منحصربه‌فردی همچون مقاومت به شوک حرارتی، نقطه ذوب بالا (۲۰۰۰ °C) و پایداری شیمیایی، یکی از مهم‌ترین قطعات صنعتی به‌شمار می‌رود. مولایت دارای ساختاری با جاهای خالی اکسیژن است که وضعیت این جاهای خالی به دما بستگی ندارد. این ویژگی سبب شده است تا مولایت ماده‌ای مقاوم به خزش باشد. همچنین، تشکیل بلورهای مخلوط در محدوده وسیعی از نسبت Al_2O_3/SiO_2 و جادادن انواع زیادی از کاتیون‌ها در ساختار بلورین خود از دیگر ویژگی‌های بارز مولایت است [۱].

علی‌رغم خواص مطلوب اشاره شده، سرامیک‌های مولایتی در کاربردهای خاص، به‌دلیل خواص مکانیکی نسبتاً ضعیف مانند چقرمگی شکست کم ($\sim 2/5 \text{ MPa.m}^{1/2}$)، مقاومت به سایش ضعیف و سینترپذیری کم، دچار محدودیت‌هایی هستند [۲]. به همین دلیل، امروزه، تلاش برای بهبود عملکرد سرامیک‌های مولایتی به‌عنوان یکی از زمینه‌های پژوهشی پژوهشگران مطرح است.

یکی از بهترین و مؤثرترین روش‌ها برای تقویت خواص مکانیکی سرامیک‌های مولایتی استفاده از ذرات تقویت‌کننده

*عهده دار مکاتبات: ایمان مباحشرپور

نشانی: ایران، کرج، پژوهشگاه مواد و انرژی، پژوهشکده سرامیک، تلفن: ۰۲۶-۳۶۲۸۰۰۴۰، دورنگار: ۰۲۶-۳۶۲۰۱۸۸۸

پیام‌نگار: i.mobasherpour@merc.ac.ir

همچون (۱) سینتر همراه با افزودنی، (۲) سینتر همراه با اعمال فشار خارجی و (۳) پخت سریع اشاره کرد [۲، ۱۲ و ۱۳].

امروزه، روش تفجوشی پلاسمای جرقه‌ای یکی از روش‌های نوین در تولید قطعات سرامیکی با هدف تفجوشی سریع در نظر گرفته می‌شود [۶].

در پژوهشی [۱۴]، قطعه مولایت از واکنش مستقیم آلومینا/کائولن با میانگین اندازه ذرات ۳/۲۹ میکرون، به روش تفجوشی پلاسمای جرقه‌ای، در محدوده دمای ۱۷۰۰-۱۴۰۰ درجه سلسیوس تولید شده است. سختی و چقرمگی شکست نمونه سینترشده، در دمای ۱۷۰۰ درجه سلسیوس، تحت فشار ۲۰ مگاپاسکال و زمان ماندگاری ۱۵ دقیقه و با چگالی نزدیک به دانسیته تئوری، به ترتیب ۱۲۵۹ Hv و $2/8 \text{ MPa.m}^{1/2}$ گزارش شده است.

گائو^۱ و همکارانش [۱۵] قطعات نانوکامپوزیت مولایت- (۵ و ۱۰ درصد حجمی) سیلیکون کاربید را با استفاده از روش تفجوشی جرقه پلاسمای، در محدوده دمایی ۱۳۰۰ تا ۱۵۰۰ درجه سلسیوس، با نرخ گرمایش ۲۰۰ درجه سلسیوس بر دقیقه سینتر کردند. نتایج حاصل از خواص مکانیکی نشان داد که، در دمای ۱۵۰۰ درجه سلسیوس، بیشینه استحکام ۴۷۷ MPa برای کامپوزیت مولایت- (۵ درصد حجمی) سیلیسیم کاربید به دست آمد. همچنین، به دلیل زمان ماندگاری کوتاه در دمای سینتر، رشد دانه گزارش نشده است.

قهرمانی^۲ و همکارانش [۳] کامپوزیت مولایت-کاربید تیتانیم را با روش تفجوشی جرقه پلاسمای در محدوده دمایی ۱۵۰۰ تا ۱۶۰۰ درجه سلسیوس و با زمان ماندگاری ۶۰۰ ثانیه سینتر و خواص مکانیکی و فیزیکی این کامپوزیت را بررسی کردند. نتایج این بررسی نشان داد که برای کامپوزیت مولایت- (۱۰ تا ۳۰ درصد وزنی) کاربید تیتانیم، در دمای ۱۵۵۰ درجه سلسیوس، دانسیته ۹۵ درصد، و در دمای ۱۶۰۰ درجه سلسیوس، تقریباً دانسیته کامل به دست آمد. بهترین استحکام و سختی به ترتیب ۲۷۴ MPa و ۱۳۳۵ Hv برای کامپوزیت مولایت با مقدار ۱۰ درصد تقویت‌کننده در دمای ۱۶۰۰ درجه سلسیوس حاصل شده است.

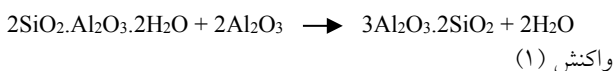
(به عنوان فاز دوم) و تولید کامپوزیت‌های سرامیکی زمینه مولایتی است. گزارش‌هایی مبنی بر استفاده از ذرات تقویت‌کننده مانند Pr_6O_{11} و $[\text{A}] \text{Nd}_2\text{O}_3$ ، [۷ و ۶] WC، [۵ و ۴] SiC، [۳] TiC [۹] با هدف بهبود خواص مکانیکی سرامیک‌های مولایتی وجود دارد. شاید بتوان گفت که کامپوزیت‌های مولایت-کاربید تنگستن مهم‌ترین و شناخته‌شده‌ترین گروه از خانواده کامپوزیت‌های پایه مولایتی هستند. از این رو، پژوهش‌های بسیاری به منظور شناسایی و بهبود ویژگی‌های این دسته از کامپوزیت‌ها انجام شده است.

کاربید تنگستن دارای استوکیومتری‌ها و فازهای مختلفی است. دو فاز WC و W_2C عمده‌ترین فازهایی هستند که عموماً در کنار یکدیگر و در فرایندهای متداول سنتز دیده می‌شوند. فاز W_2C فازی است دما بالا و در دمایی بیش از ۲۶۵۰ درجه کلوین به طور تعادلی پایدار است، درحالی‌که WC در زیر این دما می‌تواند پایدار باشد. گزارش شده است که W_2C شکننده‌تر از WC و خواص مکانیکی و تریبولوژی آن نیز پایین‌تر است. برخلاف بیشتر سرامیک‌های متداول، کاربید تنگستن، ضمن داشتن سختی بالا، چقرمگی و استحکام خمشی مناسبی نیز دارد. بنابراین، اضافه کردن آن به سایر سرامیک‌ها مانند مولایت، ضمن بالابردن استحکام به دلیل جلوگیری از حرکت مرزدانه‌ها و همچنین رشد دانه‌ها حین فرایند تفجوشی، چقرمگی را نیز افزایش می‌دهد. کاربید تنگستن می‌تواند سازوکارهای جلوگیری یا مهار رشد ترک را نیز فعال کند و بدین وسیله چقرمگی کامپوزیت را افزایش دهد [۱۰، و ۱۱].

یکی از مشکلات عمده در فرایند سینتر سرامیک‌های مولایتی، رشد افراطی دانه‌ها در طی این فرایند است. از این رو، جلوگیری از رشد دانه، هنگام فرایند سینتر، یکی از مهم‌ترین اهداف پژوهشی پژوهشگران به شمار می‌رود. بسیاری از خواص قطعات سرامیکی به اندازه دانه آن‌ها بستگی دارد. بنابراین، دستیابی به خواص موردنظر مستقیماً به کنترل رشد دانه وابسته است. همچنین، رشد دانه فواصل نفوذ برای انتقال ماده را افزایش می‌دهد و به کاهش سرعت تراکم می‌انجامد. بنابراین، کنترل رشد دانه نقش مهمی در دستیابی به تراکم بالا دارد. در تولید قطعات سرامیکی، برای جلوگیری از رشد افراطی دانه‌ها، راه‌حل‌های زیادی پیشنهاد شده است که از آن جمله می‌توان به مواردی

² Ghahremani¹ Gao

سلسیوس خشک شدند. به منظور دستیابی به فاز مورد نظر (مطابق واکنش ۱)، پودر خشک شده با سرعت گرمایش ۱۰ درجه سلسیوس بر دقیقه به مدت ۲ ساعت در دمای ۱۶۰۰ درجه سلسیوس کلسینه شد.



پودر کاربید تنگستن با متوسط اندازه دانه ۳ میکرون برای تولید کامپوزیت مولایت-کاربید تنگستن استفاده شد. مخلوط پودرهای مولایت سنتز شده و کاربید تنگستن با درصدهای وزنی ۵، ۱۰ و ۱۵ در آسیاب (با مشخصات ارائه شده در سنتز مولایت) با سرعت ۲۰۰ rpm و به مدت ۳ ساعت آسیاب شدند. در نهایت، مخلوط حاصل از الک مش ۱۰۰ میکرون عبور داده شد.

مخلوط پودر حاصل از مرحله قبل درون یک قالب استوانه‌ای گرافیتی به قطر ۳۰ میلی‌متر، که با فویل گرافیتی پوشش داده شده بود، بارگیری و فرایند تف‌جوشی پلاسمای جرقه‌ای^۳ انجام شد. چرخه گرمایش همه نمونه‌ها، از دمای اتاق تا محدوده ۱۴۵۰-۱۳۰۰ درجه سلسیوس، با زمان ماندگاری ۴ دقیقه، در بیشینه دما و با اعمال فشار ۳۰ مگا پاسکال تعیین شد. نرخ گرمایش در طول فرایند تف‌جوشی ۵۰ درجه سلسیوس بر دقیقه و تحت خلأ ۱۰ پاسکال در نظر گرفته شد.

برای اندازه‌گیری سختی نمونه‌ها، از روش میکروویکرز^۴ با اعمال نیروی یک کیلوگرم استفاده شد. این آزمون، برای هر نمونه، ۳ بار تکرار و میانگین اعداد به دست آمده به همراه انحراف معیارشان گزارش شد.

به منظور بررسی مقاومت به سایش، نمونه‌های سینتر شده تحت آزمون سایش قرار گرفتند. روش سایش با استفاده از آزمون پین روی دیسک مطابق استاندارد ASTM: G132-96 [۱۸] انجام شد. پین مورد استفاده در این آزمون از جنس کاربید تنگستن با سختی ۸۰ راкол A با قطر یک میلی‌متر و ارتفاع ۵ میلی‌متر انتخاب شد. قطر دیسک ساخته شده ۳۰ میلی‌متر و قطر مسیر سایش ۲۰ میلی‌متر و فرکانس ۲۰ هرتز در نظر گرفته شد. آزمون سایش در دمای محیط و با بار اعمالی ۲ کیلوگرم انجام شد.

رجایی^۱ و همکارانش [۶ و ۷] به بررسی اثر دمای تف‌جوشی بر میکروساختار و خواص مکانیکی کامپوزیت‌های مولایتی تقویت شده با ۱۰ درصد وزنی کاربید تنگستن تولید شده به روش تف‌جوشی پلاسمای جرقه‌ای پرداخته‌اند. براساس گزارش آن‌ها، افزایش دمای تف‌جوشی، از ۱۳۰۰ تا ۱۴۰۰ درجه سلسیوس، رفتار چگالی و خواص مکانیکی را بهبود می‌بخشد. اگرچه افزایش دمای تف‌جوشی به بالاتر از ۱۴۰۰ درجه سلسیوس به افزایش دانه و تغییرات فازی محدود و تشکیل فاز W₂C در کاربید تنگستن منجر شده است، بررسی خواص مکانیکی این کامپوزیت بیانگر بهبود عملکرد سرامیک‌های مولایتی تقویت شده با کاربید تنگستن است.

تاکنون پژوهش‌های گوناگونی درباره تأثیر اضافه کردن افزودنی‌های متفاوت به ریزساختار، چگالش و خواص مکانیکی کامپوزیت‌های پایه مولایت انجام شده است [۱۶ و ۱۷]. با وجود این، مرور دقیق مراجع بیانگر آن است که تاکنون پژوهشی درخصوص تأثیر افزودنی کاربید تنگستن بر مقاومت به سایش کامپوزیت‌های پایه مولایت انجام نشده است. لذا، در این پژوهش، نمونه‌های کامپوزیتی مولایت-کاربید تنگستن با درصدهای گوناگون افزودنی (۵، ۱۰ و ۱۵ درصد وزنی کاربید تنگستن) در دماهای ۱۳۰۰، ۱۳۵۰، ۱۴۰۰ و ۱۴۵۰ درجه سلسیوس به مدت ۴ دقیقه و با اعمال فشار ۳۰ MPa به روش تف‌جوشی پلاسمای جرقه‌ای تولید و با نمونه مولایتی (بدون افزودنی) از نظر مقاومت به سایش به روش پین روی دیسک در دمای محیط مقایسه شدند.

۲- روش تحقیق

در این پژوهش، برای تولید کامپوزیت‌های مولایت-کاربید تنگستن، در مرحله اول، پودر مولایت از واکنش مستقیم آلومینا (Al₂O₃) و کائولن^۲ (2SiO₂·Al₂O₃·2H₂O) سنتز شد. برای این منظور، ابتدا پودرهای آلومینا/کائولن با نسبت وزنی ۶۰/۴۰ آماده و سپس در یک کاپ کاربید تنگستنی حاوی اتانول و گلوله‌های کاربید تنگستنی با نسبت گلوله به پودر ۱۰ به یک با سرعت ۳۰۰ rpm و به مدت ۳ ساعت آسیاب شدند. مواد مخلوط شده در خشک‌کن به مدت ۲۴ ساعت در دمای ۱۲۰ درجه

³ SPS-20T-10, Easy Fashion Metal Products Trade Co.

⁴ Micro Vickers

¹ Rajaei

² Kaolinite

کاربید تنگستن (ترکیب بهینه) با کد نمونه‌های MA-10%WC-1350، MA-10%WC-1400 و MA-10%WC-1450 پرداخته شده است.

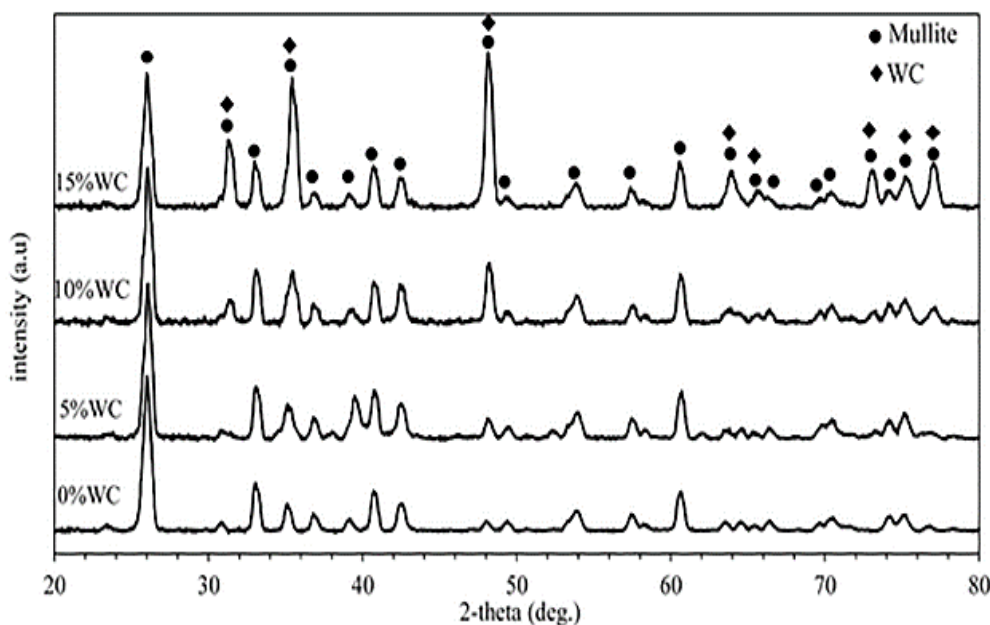
۳- نتایج و بحث

۳-۱- تأثیر مقدار تقویت کننده کاربید تنگستن بر خواص سایشی کامپوزیت مولایت-کاربید تنگستن در دمای بهینه ۱۴۰۰ درجه سلسیوس

شکل ۱ الگوی پراش پرتو ایکس نمونه‌های MA-1400، MA-5%WC-1400، MA-10%WC-1400 و MA-15%WC-1400 را که در دمای ۱۴۰۰ درجه سلسیوس سیتتر شده‌اند، نشان می‌دهد. طبق الگوی پراش پرتو ایکس، فقط فازهای مولایت و کاربید تنگستن شناسایی شدند، و با افزایش مقدار کاربید تنگستن، از صفر تا ۱۵ درصد وزنی، فاز جدیدی شناسایی نشده است، اگرچه با افزایش درصد وزنی ماده افزودنی پیک‌های مربوط به کاربید تنگستن قوی‌تر شده است.

برای تعیین مشخصه‌های ساختاری و فازی نمونه‌ها قبل و بعد از آزمون سایش، از میکروسکوپ الکترونی روبشی گسیل میدانی (FESEM/EDS, MIRA3TESCAN-XMU) و آنالیز پراش پرتو ایکس (X-Ray Diffraction (XRD, Philips) Cu K α 40 KV, 30 mA, Step size: 0.02° استفاده شد.

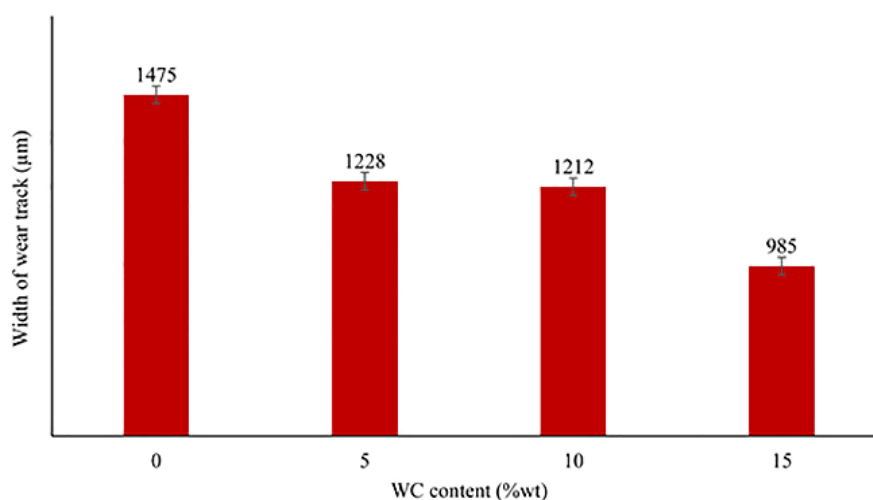
پژوهش حاضر در ادامه مطالعات گذشته [۶، ۷] روی ۳ کامپوزیت ۵، ۱۰ و ۱۵ درصد وزنی کاربید تنگستن در زمینه مولایت و یک نمونه شاهد (مولایت خالص - بدون افزودنی کاربید تنگستن) با هدف بررسی و مقایسه مقاومت به سایش آن‌ها انجام شده است. با توجه به این‌که دمای بهینه تفجوشی و ترکیب کامپوزیتی بهینه در مطالعات قبلی تعیین و گزارش شده است، در مقاله حاضر، در دو بخش به بررسی (۱) تأثیر مقدار تقویت کننده کاربید تنگستن بر خواص سایشی کامپوزیت مولایت-کاربید تنگستن در دمای بهینه ۱۴۰۰ درجه سلسیوس با کد نمونه‌های MA-1400، MA-5%WC-1400، MA-10%WC-1400 و MA-15%WC-1400 و (۲) تأثیر دمای سیتتر بر خواص سایشی کامپوزیت مولایت- (۱۰ درصد وزنی)



شکل ۱. الگوی پراش پرتو ایکس از نمونه‌های سیتتر شده در دمای ۱۴۰۰ درجه سلسیوس

طبق نمودار، با مقایسه عرض ناحیه ساییده شده نمونه‌های MA-1400 و MA-15%WC-1400 می‌توان گفت که، با افزایش مقدار تقویت کننده تا ۱۵ درصد وزنی، مقاومت به سایش افزایش یافته و عرض سایش کاهش یافته است.

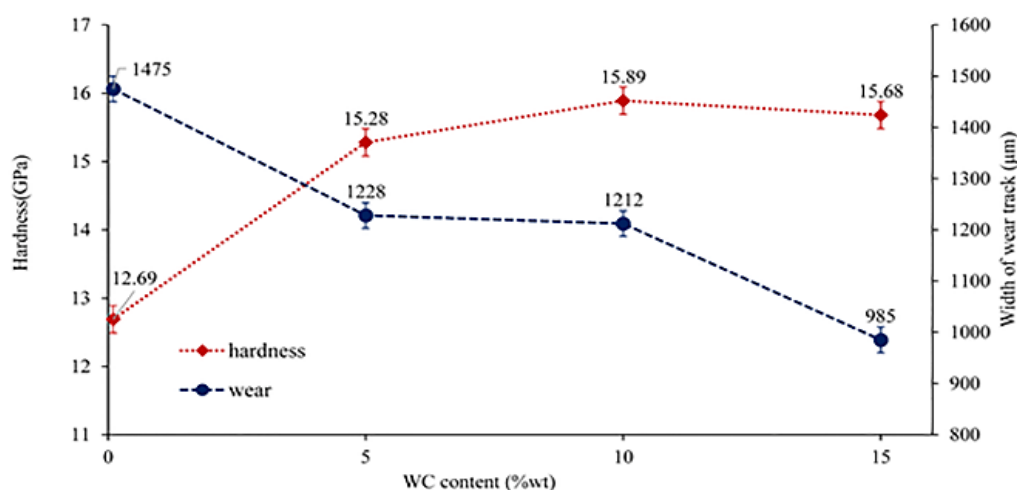
در شکل ۲، نمودار تغییرات عرض ساییده شده با افزایش مقدار کاربید تنگستن در کامپوزیت مولایت-کاربید تنگستن تفجوشی شده به روش تفجوشی پلاسمای جرقه‌ای برای نمونه‌های با و بدون افزودنی کاربید تنگستن رسم شده است.



شکل ۲. تغییرات عرض ساییده شده برحسب درصد وزنی ذرات کاربید تنگستن در نمونه‌های سینترشده در دمای ۱۴۰۰ درجه سلسیوس

کاهش می‌یابد. شکل ۳ نمودار سه‌تایی سختی و عرض سایش برحسب مقدار تقویت کننده برای نمونه‌های مولایتی با و بدون تقویت کننده کاربید تنگستن را نشان می‌دهد. طبق این نمودار با افزایش درصد کاربید تنگستن، عرض ساییده شده نیز کاهش یافته است.

با توجه به اینکه کاربید تنگستن سختی بالاتری نسبت به زمینه مولایتی دارد پس می‌توان گفت که کاربید تنگستن باعث بهبود خواص سایشی بدنه مولایتی شده است. معمولاً سختی و مقاومت به سایش رابطه مستقیمی با یکدیگر دارند و با افزایش سختی مقاومت به سایش بیشتر شده و عرض ساییده شده نیز

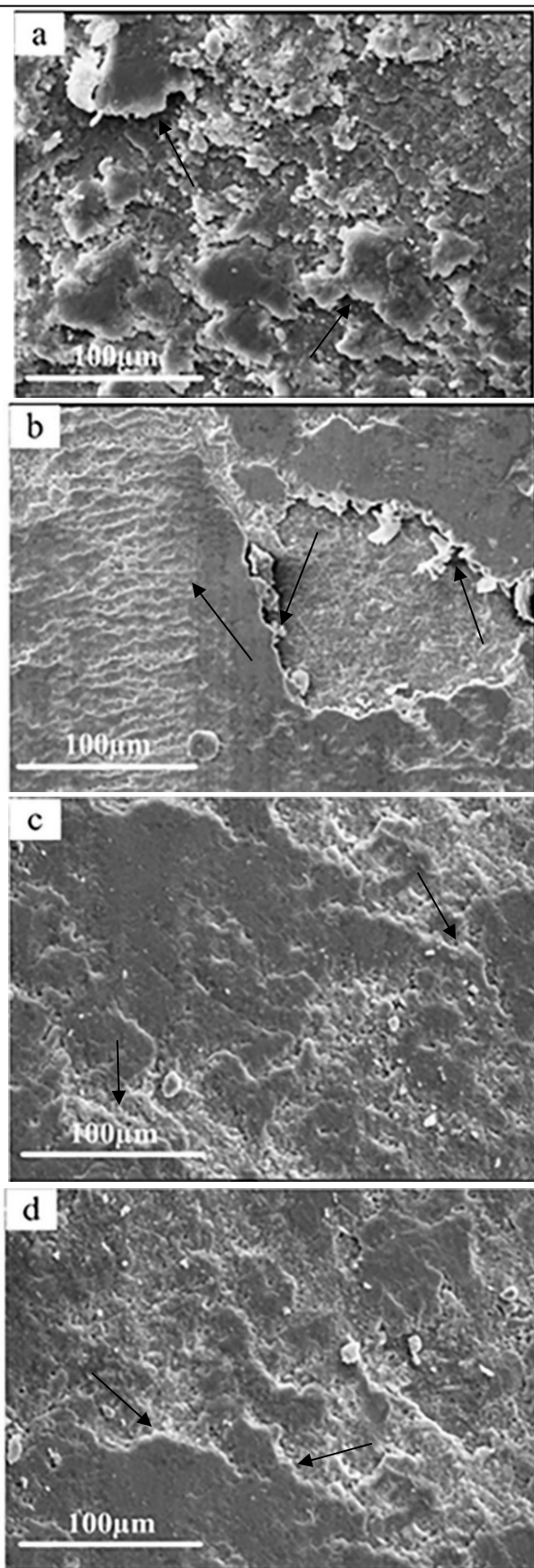


شکل ۳. نمودار سه‌تایی سختی - عرض سایش - درصد کاربید تنگستن در نمونه‌های سینترشده در دمای ۱۴۰۰ درجه سلسیوس

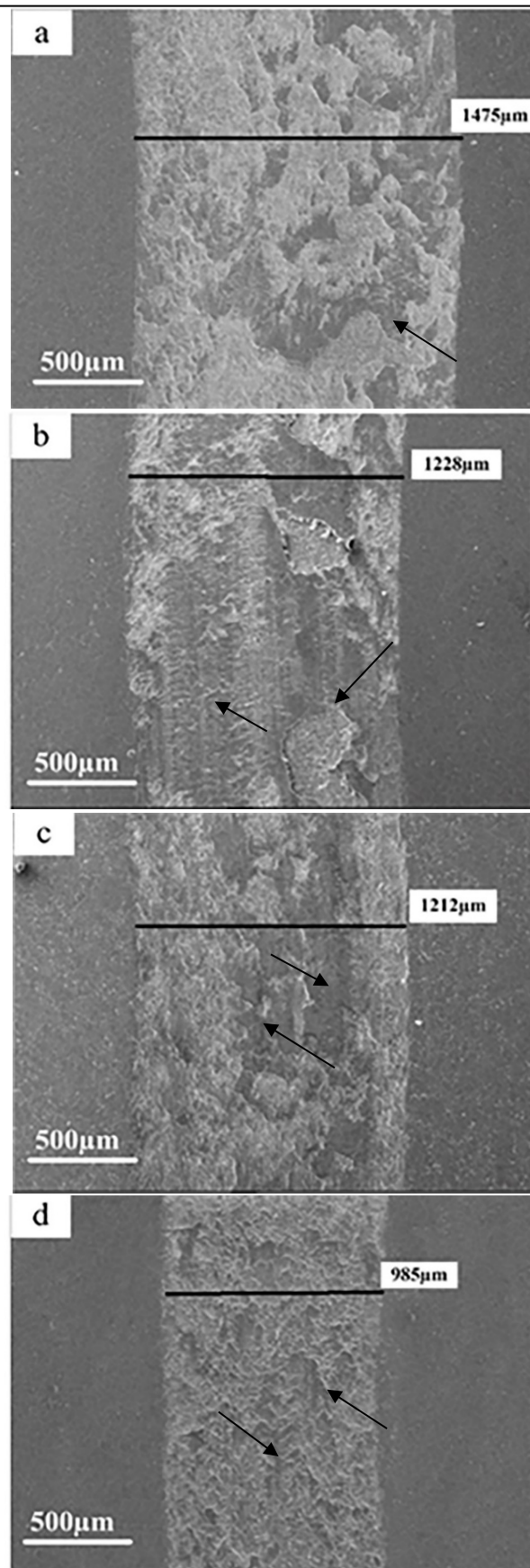
سازوکار سایش خراشان، به دلیل تفاوت در سختی بین پین کاربید تنگستنی و بدنه کامپوزیت، در نمونه‌ها دیده می‌شود و به اصطلاح سطح سایش شخم زده می‌شود. از سوی دیگر، در بخش‌هایی از ریزساختار، براده‌های ایجاد شده بر اثر گردش متوالی پین کاربید تنگستنی، به سطوح سایش جوش خورده‌اند.

در شکل‌های ۴ و ۵، تصاویر میکروسکوپ الکترونی رویشی مسیر سایش و سطح سایش نمونه‌های MA-1400، MA-5%WC-1400، MA-10%WC-1400 و MA-15%WC-1400 نشان داده شده است.

طبق شکل‌های ۴ و ۵، وجود شیار در سطوح سایش در جهت حرکت پین در این نمونه‌ها نشان می‌دهد که سازوکار سایش در این حالت از نوع خراشان بوده است.



شکل ۵. تصویر میکروسکوپ الکترونی روبشی از سطح ساییده شده نمونه‌های سینترشده در دمای ۱۴۰۰ درجه سلسیوس، MA-10%WC-1400 (c)، MA-5%WC-1400 (b)، MA-1400 (a) و MA-15%WC-1400 (d)



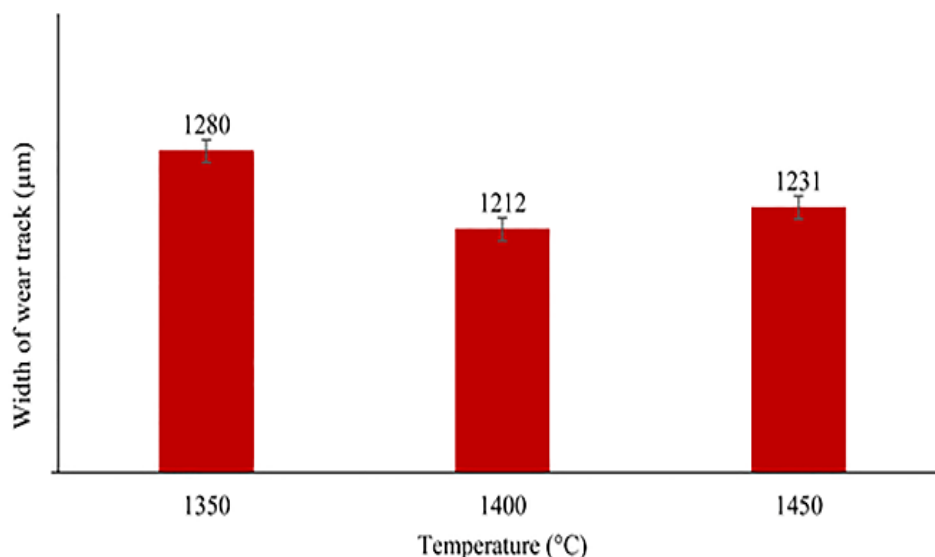
شکل ۴. تصویر میکروسکوپ الکترونی روبشی از مسیر سایش در نمونه‌های سینترشده در دمای ۱۴۰۰ درجه سلسیوس، MA-10%WC-1400 (c)، MA-5%WC-1400 (b)، MA-1400 (a) و MA-15%WC-1400 (d)

سازوکارهای خراشان و لایه‌ای شدن در سطح و مسیر سایش دیده می‌شود. با دقت در لایه‌های کندی ایجاد شده (شکل‌های ۴ و ۵) به نظر می‌رسد که، با افزایش مقدار کاربرد تنگستن در قطعه‌های کامپوزیتی، ورقه‌های جدا شده از سطح سایش کوچک‌تر شده‌اند.

۳-۲- تأثیر دمای سینتر بر خواص سایشی ترکیب بهینه شده

MA-10%WC

به‌منظور بررسی اثر دمای سینتر بر رفتار سایشی کامپوزیت‌های مولایت-کاربید تنگستن، نمونه با ترکیب MA-10%WC، که در دماهای ۱۳۰۰، ۱۳۵۰، ۱۴۰۰ و ۱۴۵۰ درجه سلسیوس سینتر شده بود، تحت آزمون سایش قرار گرفت. نمونه MA-10%WC-1300، به‌دلیل استحکام و سختی پایین، بار اعمالی را تحمل نکرد و حین انجام آزمون سایش، دچار شکست شد. بنابراین، آزمون سایش روی سایر نمونه‌ها انجام شد. در شکل ۶، نمودار تغییرات عرض سایش برحسب دمای سینتر برای نمونه‌های MA-10%WC-1350، MA-10%WC-1400 و MA-10%WC-1450 رسم شده است.

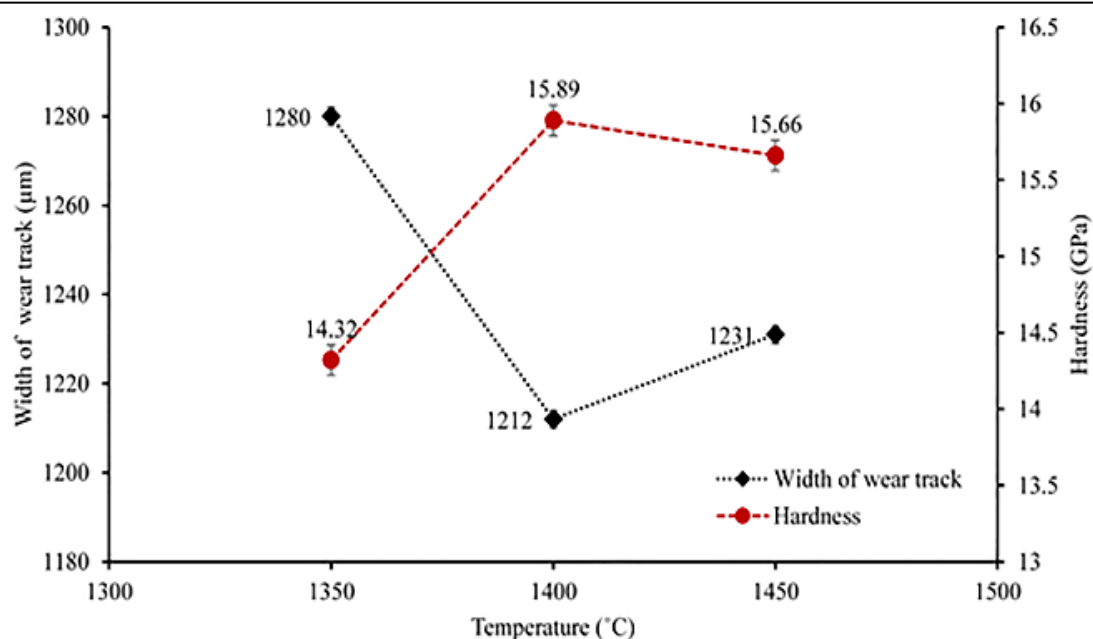


شکل ۶. تغییرات عرض ساییده شده برحسب دمای سینتر در نمونه‌های حاوی ۱۰ درصد وزنی کاربرد تنگستن

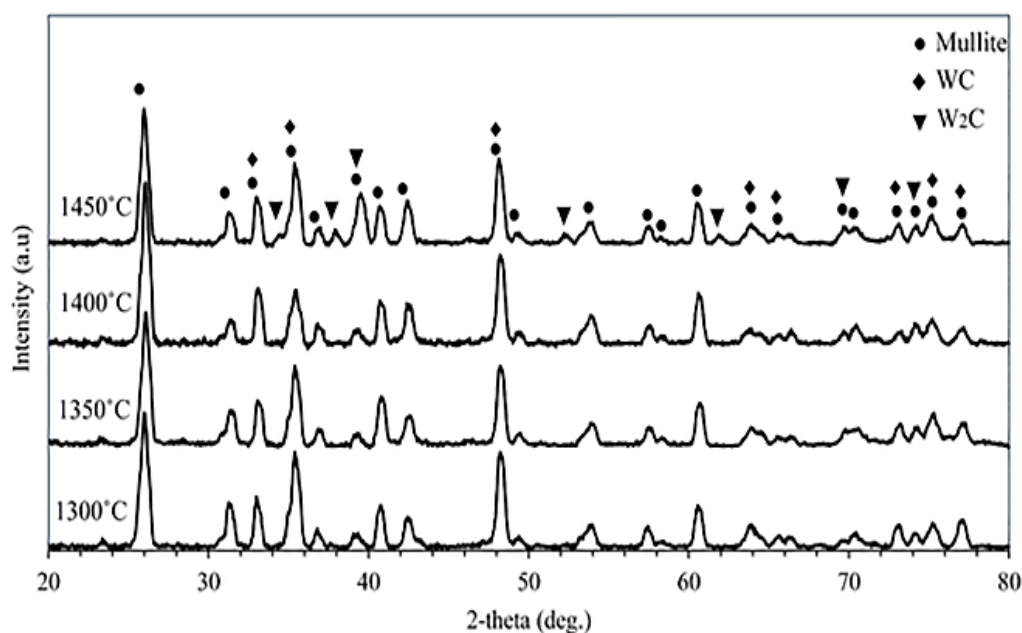
طبق این نمودار، با افزایش دمای سینتر، عرض ناحیه ساییده شده تا دمای ۱۴۰۰ درجه سلسیوس کاهش یافته و سپس در دمای ۱۴۵۰ درجه سلسیوس اندکی افزایش یافته است. در شکل ۷، ارتباط سختی و مقاومت به سایش نشان داده شده است. با توجه به نتایج آنالیز پراش پرتو ایکس مربوط به نمونه

جوش‌خوردن ذرات در نمونه MA-1400 (شکل ۵-ا) دیده می‌شود. در بقیه نمونه‌ها نیز، جوش‌خوردن ذرات کنده شده روی سطح سایش وجود دارد، ولی مقدارشان از نمونه مولایت خالص کمتر است. با اعمال بار بر نمونه‌ها و هنگام گردش دیسک، در برخی از قسمت‌های سطح سایش، ترک‌هایی ایجاد شده است. مطابق نظریه لایه‌ای شدن در سطوح سایش [۱۹]، این ترک‌ها از سطوح داخلی در حین سایش ایجاد می‌شوند، و با تکرار سیکل‌های سایش، این سطوح شرایطی مشابه شرایط ایجاد شده در حین خستگی را تجربه می‌کنند و به‌تدریج این ترک‌ها به سطح نمونه می‌رسند که، در مرحله آخر، با به هم پیوستن این ترک‌ها، بخشی از سطح سایش از نمونه جدا می‌شود. از بررسی تصاویر میکروسکوپ الکترونی روبشی مربوط به نمونه مولایت خالص، سازوکار ورقه‌ای شدن قابل رؤیت است. در نمونه MA-5%WC-1400، برخی ناحیه‌های جدا شده از سطح نیز دیده می‌شود. به نظر می‌رسد که سازوکار موجود در نمونه‌های با ۱۰ و ۱۵ درصد وزنی تقویت کننده کاربرد تنگستن مشابه یکدیگر هستند. در واقع، در این نمونه‌ها، ترکیبی از

طبق این نمودار، با افزایش دمای سینتر، عرض ناحیه ساییده شده تا دمای ۱۴۰۰ درجه سلسیوس کاهش یافته و سپس در دمای ۱۴۵۰ درجه سلسیوس اندکی افزایش یافته است. در شکل ۷، ارتباط سختی و مقاومت به سایش نشان داده شده است. با توجه به نتایج آنالیز پراش پرتو ایکس مربوط به نمونه



شکل ۷. نمودار سختی و عرض سایش برحسب دمای سیتر برای نمونه‌های حاوی ۱۰ درصد وزنی کاربید تنگستن



شکل ۸. الگوی پراش پرتو ایکس نمونه‌های MA-10%WC-1300، MA-10%WC-1350، MA-10%WC-1400 و MA-10%WC-1450

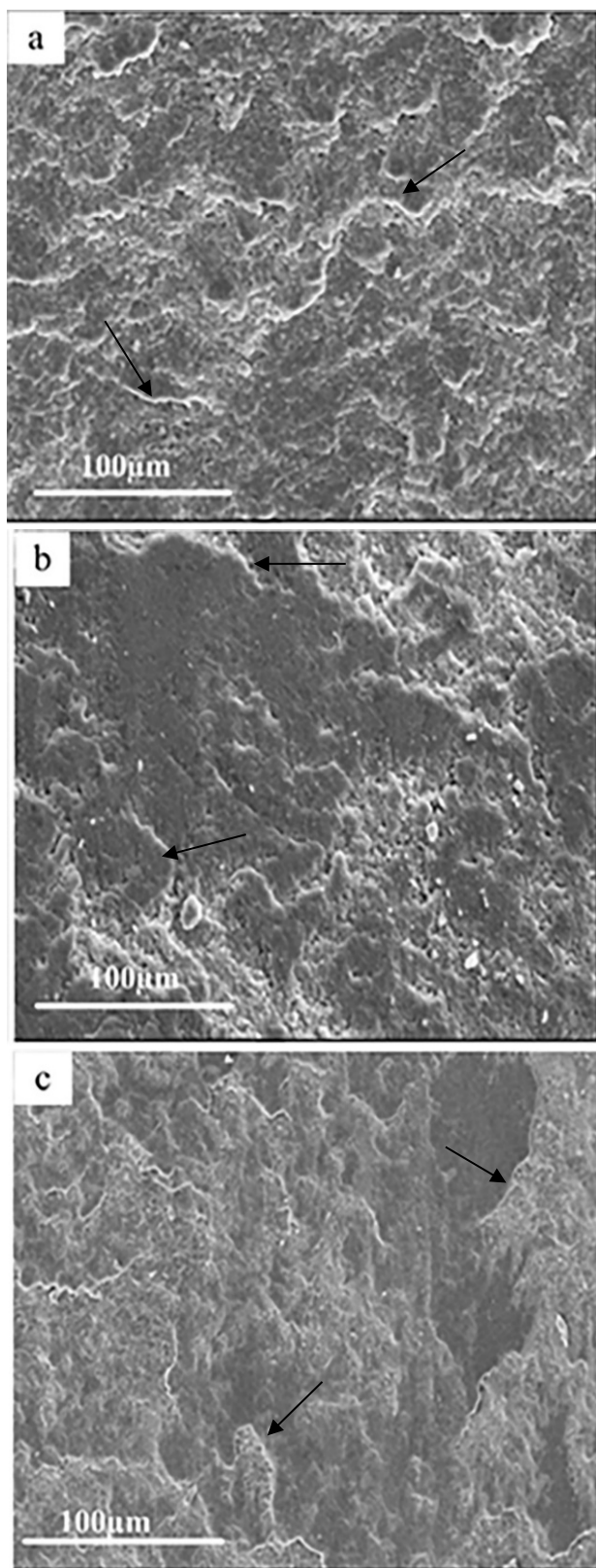
ترکیبی از سازوکار خراشان و لایه‌ای شدن رخ داده است، اگرچه سازوکار غالب لایه‌ای شدن سطح است.

در مجموع، می‌توان نتیجه گرفت که افزودن ذرات کاربید

تنگستن تا ۱۰ درصد وزنی به زمینه سرامیک‌های مولایتی می‌تواند تأثیر بسزایی بر افزایش مقاومت به سایش آن‌ها داشته باشد.

در شکل‌های ۹ و ۱۰، تصویر مسیر سایش و سطح سایش برای نمونه‌های MA-10%WC-1350، MA-10%WC-1400 و MA-10%WC-1450 نشان داده شده است.

در نمونه MA-10%WC-1350، سازوکار غالب کندگی ذرات و جوش خوردن آن‌ها بر سطح ساییده شده بر اثر حرکت پین کاربید تنگستنی است. همچنین، آثاری از سایش خراشان را در این نمونه می‌توان دید. در نمونه MA-10%WC-1450،

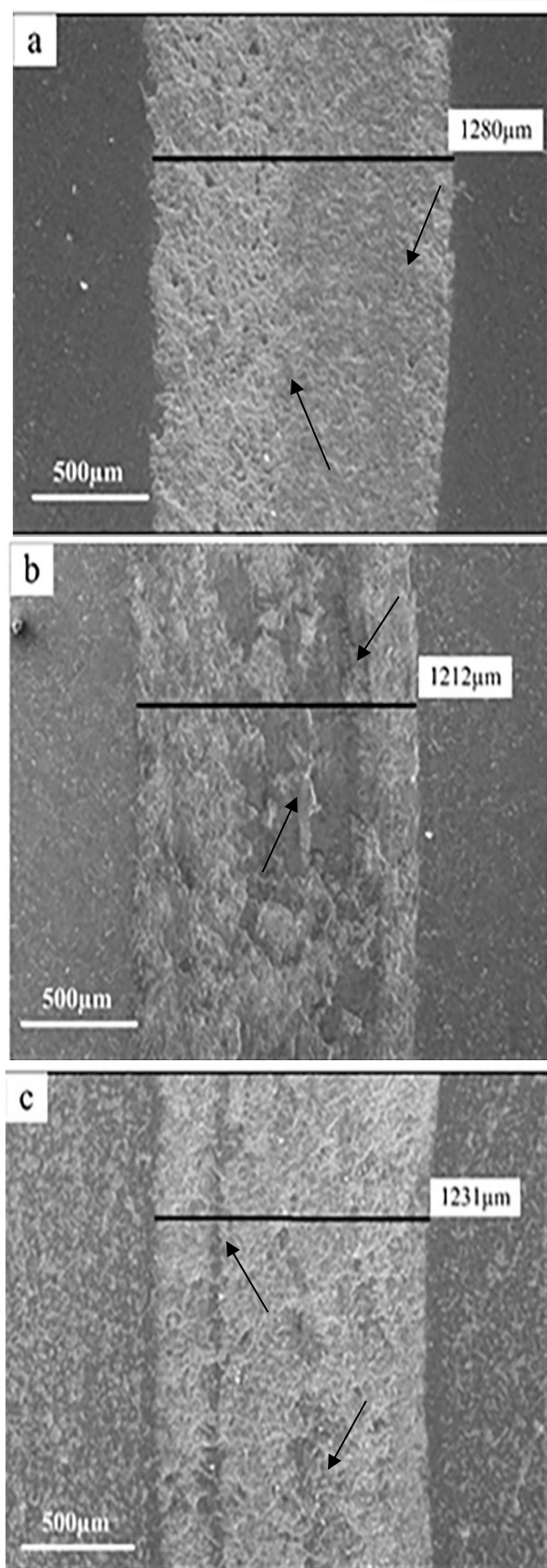


شکل ۱۰. تصویر میکروسکوپ الکترونی روبشی از سطح ساییده

شده نمونه‌های حاوی ۱۰ درصد وزنی کاربید تنگستن،

(a) MA-10%WC-1350، (b) MA-10%WC-1400 و

(c) MA-10%WC-1450



شکل ۹. تصویر میکروسکوپ الکترونی روبشی از مسیر سایش

نمونه‌های حاوی ۱۰ درصد وزنی کاربید تنگستن،

(a) MA-10%WC-1350، (b) MA-10%WC-1400 و

(c) MA-10%WC-1450

۴- نتیجه‌گیری

4. Warriar, K. G. K., Anilkumar, G. M., "Densification of mullite-SiC nanocomposite sol-gel precursors by pressureless sintering", *Materials Chemistry and Physics*, Vol. 67, No. 1-3, (2001), 263-266. [https://doi.org/10.1016/S0254-0584\(00\)00447-8](https://doi.org/10.1016/S0254-0584(00)00447-8)
5. Ando, K., Chu, M. C., Tsuji, K., Hirasawa, T., Kobayashi, Y., Sato, S., "Crack healing behaviour and high-temperature strength of mullite/SiC composite ceramics", *Journal of the European Ceramic Society*, Vol. 22, No. 8, (2002), 1313-1319. [https://doi.org/10.1016/S0955-2219\(01\)00431-9](https://doi.org/10.1016/S0955-2219(01)00431-9)
6. Rajaei, H., Mobasherpour, I., Farvizi, M., Zakeri, M., "Effect of composition on mechanical properties of mullite-WC nano composites prepared by spark plasma sintering", *Tribology in Industry*, Vol. 38, No. 4, (2016), 552-558. <https://doaj.org/article/c470bcd6f6e7408e93fad5607250c7b9>
7. Rajaei, H., Farvizi, M., Mobasherpour, I., Zakeri, M., "Effect of spark plasma sintering temperature on microstructure and mechanical properties of mullite-WC composites", *International Journal of Refractory Metals and Hard Materials*, Vol. 70, (2018), 197-201. <https://doi.org/10.1016/j.jrmhm.2017.10.012>
8. Ghasali, E., Orooji, Y., Faeghinia, A., Alizadeh, M., Ebadzadeh, T., "Characterization of mullite-Nd₂O₃ composite prepared through spark plasma sintering", *Ceramics International*, Vol. 47, No. 11, (2021), 16200-16207. <https://doi.org/10.1016/j.ceramint.2021.02.198>
9. Ghasali, E., Ghahremani, D., Orooji, Y., Faeghinia, A., Kazemzadeh, A., Ebadzadeh, T., "Microstructure and phase formation of mullite-Pr₆O₁₁ composite prepared by spark plasma sintering", *Journal of Rare Earths*, Vol. 41, No. 2, (2023), 283-289. <https://doi.org/10.1016/j.jre.2022.03.018>
10. Taimatsu, H., Sugiyama, S., Kodaira, Y., "Synthesis of W₂C by reactive hot pressing and its mechanical properties", *Materials Transactions*, Vol. 49, (2008), 0804070390-0804070390. <https://doi.org/10.2320/matertrans.MRA2007304>
11. Chen, W. H., Lin, H. T., Nayak, P. K., Huang, J. L., "Material properties of tungsten carbide-alumina composites fabricated by spark plasma sintering", *Ceramics International*, Vol. 40, No. 9, (2014), 15007-15012. <https://doi.org/10.1016/j.ceramint.2014.06.102>
12. Chen, C. Y., Lan, G. S., Tuan, W. H., "Preparation of mullite by the reaction sintering of kaolinite and alumina", *Journal of the European Ceramic Society*, Vol. 20, No. 14-15, (2000), 2519-2525. [https://doi.org/10.1016/S0955-2219\(00\)00125-4](https://doi.org/10.1016/S0955-2219(00)00125-4)
13. Kanka, B., Schneider, H., "Sintering mechanisms and microstructural development of coprecipitated mullite", *Journal of Materials Science*, Vol. 29, No. 5, (1994), 1239-1249. <https://doi.org/10.1007/BF00975071>
14. Ghahremani, D., Ebadzadeh, T., Maghsodipour, A., "Spark plasma sintering of mullite: relation between microstructure, properties and spark plasma sintering (SPS) parameters", *Ceramics International*, Vol. 41, No. 5, (2015), 6409-6416. <https://doi.org/10.1016/j.ceramint.2015.01.078>
15. Gao, L., Jin, X., Kawaoka, H., Sekino, T., Niihara, K., "Microstructure and mechanical properties of SiC-mullite nanocomposite prepared by spark plasma sintering", *Materials Science and Engineering: A*, Vol. 334, No. 1-2, (2002), 262-266. [https://doi.org/10.1016/S0921-5093\(01\)01898-6](https://doi.org/10.1016/S0921-5093(01)01898-6)
16. Orooji, Y., Ghasali, E., Moradi, M., Derakhshandeh, M. R., Alizadeh, M., Shahedi Asl, M., Ebadzadeh, T., "Preparation of mullite-TiB₂-CNTs hybrid composite through spark plasma sintering", *Ceramics International*, Vol. 45, No. 13, (2019), 16288-16296. <https://doi.org/10.1016/j.ceramint.2019.05.154>
17. Orooji, Y., Alizadeh, A. A., Ghasali, E., Derakhshandeh, M. R., Alizadeh, M., Shahedi Asl, M., Ebadzadeh, T., "Co-reinforcing of mullite-TiN-CNT composites with ZrB₂ and TiB₂ compounds", *Ceramics International*, Vol. 45, No. 16, (2019), 20844-20854. <https://doi.org/10.1016/j.ceramint.2019.07.072>
18. Standard Test Method for Pin Abrasion Testing, in ASTM G132-96, (2018). <https://doi.org/10.1520/G0132-96R13>
19. Lancaster, J. K., "A review of the influence of environmental humidity and water on friction, lubrication and wear", *Tribology International*, Vol. 23, No. 6, (1990), 371-389. [https://doi.org/10.1016/0301-679X\(90\)90053-R](https://doi.org/10.1016/0301-679X(90)90053-R)

این پژوهش با هدف بهبود مقاومت به سایش سرامیک‌های مولایتی از طریق افزودن ذرات تقویت کننده کاربید تنگستن و تولید کامپوزیت‌های مولایت-کاربید تنگستن به روش تفجوشی پلاسما انجام شده است. نتایج نشان داد که در دمای ثابت ۱۴۰۰ درجه سلسیوس از سینتر جرقه پلاسما، با افزایش درصد وزنی کاربید تنگستن در زمینه مولایت، به ترتیب برای مولایت، کامپوزیت‌های ۵، ۱۰ و ۱۵ درصد وزنی کاربید تنگستن عرض ساییده شده ۱۴۷۵، ۱۲۲۸، ۱۲۱۲ و ۹۸۵ میکرومتر به دست آمده است. در حقیقت، با افزایش درصد کاربید تنگستن، به دلیل سختی بالای این فاز و تأثیر آن، میزان سایش کاهش یافته است. در میزان ثابت ۱۰ درصد وزنی از کاربید تنگستن، با افزایش دمای سینتر جرقه پلاسما در دماهای ۱۳۵۰، ۱۴۰۰ و ۱۴۵۰ درجه سلسیوس، عرض سایش به ترتیب ۱۲۸۰، ۱۲۱۲ و ۱۲۳۱ میکرومتر به دست آمد. کاهش در مقاومت به سایش ناشی از دی‌کربوره شدن کاربید تنگستن و تبدیل آن به فاز W₂C در فرایند سینتر جرقه پلاسما است. نتایج آنالیز میکروسکوپ الکترونی روبشی بیانگر ایجاد سازوکارهای سایش خراشان و لایه‌ای شدن در سطح و مسیر سایش در نمونه‌های مولایتی با و بدون ذرات تقویت کننده کاربید تنگستن است. افزایش مقاومت به سایش کامپوزیت‌های مولایتی حاوی ۱۰ درصد وزنی کاربید تنگستن تولید شده به روش تفجوشی پلاسما جرقه‌ای نتایج امیدوارکننده‌ای برای ارتقای عملکرد سرامیک‌های مولایتی دارد.

۵- سپاسگزاری

به این وسیله، از مجموعه مسئولان آزمایشگاه‌های پژوهشگاه مواد و انرژی تشکر می‌کنیم.

مراجع

1. Rajaei, H., Mobasherpour, I., Farvizi, M., Zakeri, M., "Effect of mullite synthesis methods on the spark plasma sintering behaviour and mechanical properties", *Micro & Nano Letters*, Vol. 11, No. 8, (2016), 465-468. <https://doi.org/10.1049/mnl.2016.0092>
2. Schneider, H., Schreuer, J., Hildmann, B., "Hildmann, structure and properties of mullite—A review", *Journal of the European Ceramic Society*, Vol. 28, No. 2, (2008), 329-344. <https://doi.org/10.1016/j.jeurceramsoc.2007.03.017>
3. Ghahremani, D., Ebadzadeh, T., Maghsodipour, A., "Densification, microstructure and mechanical properties of mullite-TiC composites prepared by spark plasma sintering", *Ceramics International*, Vol. 41, No. 2, (2015), 1957-1962. <https://doi.org/10.1016/j.ceramint.2014.07.146>